УДК 621.791:532.264:669.71

А.А. ЧУЛАРИС, Г.В. ЧУМАЧЕНКО, П.И. СЕЛЕЗНЕВ

КИНЕТИКА РАСТЕКАНИЯ АЛЮМИНИЯ НА НИКЕЛЕ В УСЛОВИЯХ ПАЙКИ

Исследованы капиллярные свойства алюминия на никеле в условиях пайки. Описана кинетика смачивания и растекания алюминия, определены работа адгезии алюминия к никелю и энергия активации процессов смачивания и растекания.
Ключевые слова: пайка, капиллярные свойства, разнородные материалы, алюминиевые припои, никель.

Введение. Кинетика растекания и особенности формирования контактной зоны при растекании алюминия по никелю исследованы для условий сварки и алитирования [1-8]. В этих исследованиях никель и алюминий раздельно нагревали до требуемой температуры, превышающей температуру плавления алюминия, и наносили каплю расплавленного алюминия на твердый никель. При пайке припой и металлическая подложка находятся в постоянном контакте в течение времени совместного нагрева и изотермической выдержки. Данные о кинетике растекания алюминия на никеле и железоникелевых сплавах в условиях пайки в отечественных и зарубежных источниках отсутствуют.

Постановка задачи. В задачу данной работы входило исследование капиллярных свойств алюминия на никеле в условиях пайки.

Методы испытаний. Смачивание материалов алюминием определяли по стандартной методике лежащей капли (ГОСТ 23904-79). В качестве подложки использовали никель марки НП2 ГОСТ492-73, в качестве припоя - технический алюминий марки АД1 ГОСТ 4784-97 (сумма примесей не более 0,01%).

Для удаления загрязнений и окисной пленки с поверхности припоя навеску объемом 0,148 см^3 опускали на 30 секунд в водный раствор плавиковой и азотной кислот ($HF:HNO_3:H_2O$=2:1:2), затем промывали в проточной воде, обезжиривали ацетоном и обезвоживали спиртом. Пластину основного металла - подложку размером 20х20 мм - зачищали наждачной шкуркой с зернистостью 3-20 мкм, протирали ацетоном и спиртом непосредственно перед загрузкой в камеру. Образцы помещали в «мягкий» титановый контейнер, конструкция которого позволяла вести визуальное наблюдение за процессом, и затем нагревали в печи сопротивления до температуры 1123К. При этой температуре проводили изотермическую выдержку в течение 15 минут.

Все эксперименты по смачиванию и растеканию проводили на экспериментальной вакуумной установке при остаточном давлении $1 \cdot 10^{-2}$Па. Во время экспериментов вели визуальное наблюдение за процессами смачивания и растекания, фиксировали температуру и время стадий этих процессов.

Капиллярные свойства алюминия оценивали по величине площади растекания и конечного краевого угла смачивания капли припоя. Величины краевых углов рассчитывали по зависимости

$$\sin\theta = \frac{d_k \cdot h_k}{\frac{d_k^2}{4} + h_k^2},$$

где d_k – диаметр капли на подложке, мм; h_k – высота капли, мм.

Величину работы адгезии W_a рассчитывали по уравнению Юнга

$$W_a = \sigma_{LV}(1+\cos\theta),$$

где σ_{LV}=930 МДж/м^2 - поверхностное натяжение расплава алюминия АД1.

Энергии активации процесса растекания припоев рассчитывали по логарифмической зависимости радиуса капли от обратной температуры.

Результаты эксперимента и их обсуждение. В экспериментах по смачиванию и растеканию алюминия по никелю при нагреве образцов до температуры плавления алюминия (933К) расплавленная капля припоя приобретала форму сферы с блестящей поверхностью, что свидетельствовало о разрушении оксидной пленки алюминия. Разрушение оксидной пленки Al_2O_3 происходило практически одновременно с расплавлением припоя благодаря малой окисленности никеля, низкой стойкости NiO и возможной растворимости Al_2O_3 в никеле. При перегреве образцов до 953-973К капля припоя оседала и смачивала подложку ($\theta<90^0$). Растекание шло очень медленно. Изменение краевого угла смачивания было незначительным вплоть до 1063К. Основная стадия растекания припоя по никелю соответствовала интервалу температур 1063-1123К. Растекание алюминия по никелю при нагреве до 1123К приводило к формированию краевого угла смачивания 24^0. В течение 15-минутной изотермической выдержки при 1123К краевой угол смачивания уменьшался до 16^0, при этом увеличивалась площадь растекания. Практически полное растекание алюминия наблюдалось после 5-минутной выдержки при температуре 1123К.

Температурная зависимость величины краевого угла смачивания никеля алюминием представлена на рис. 1.

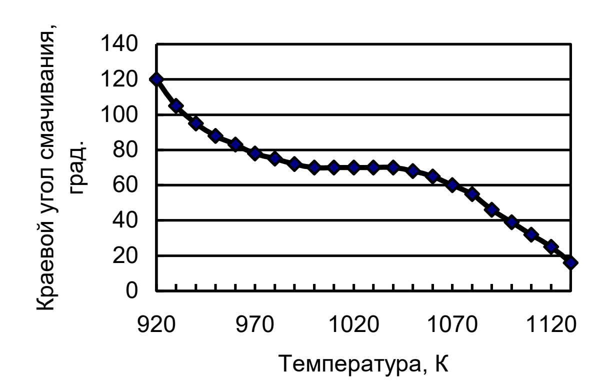


Рис. 1. Температурная зависимость величины краевого угла смачивания никеля алюминием

По величине краевого угла смачивания была рассчитана работа адгезии алюминия к никелю. Установлено, что работа адгезии алюминия к никелю увеличивается с ростом температуры и при температуре 1123 К составляет 1824 мДж/м^2 (рис. 2).

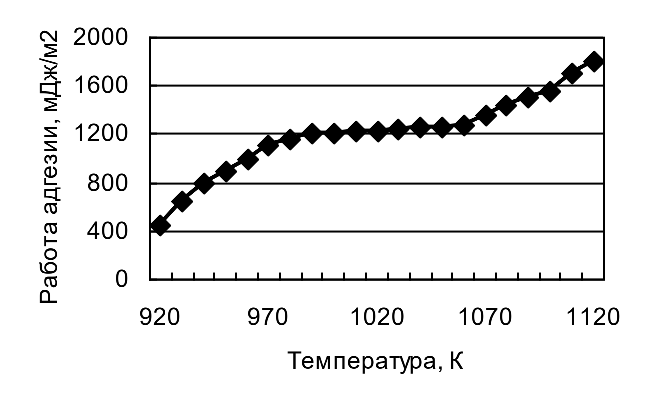


Рис. 2. Температурная зависимость изменения работы адгезии алюминия к никелю

На рис.3. представлена зависимость логарифма радиуса растекания алюминия по никелю от обратной температуры. Экспериментальные точки могут быть аппроксимированы в виде трех прямых с различным углом наклона к температурной оси, что свидетельствует об изменении характера процессов, определяющих растекание.

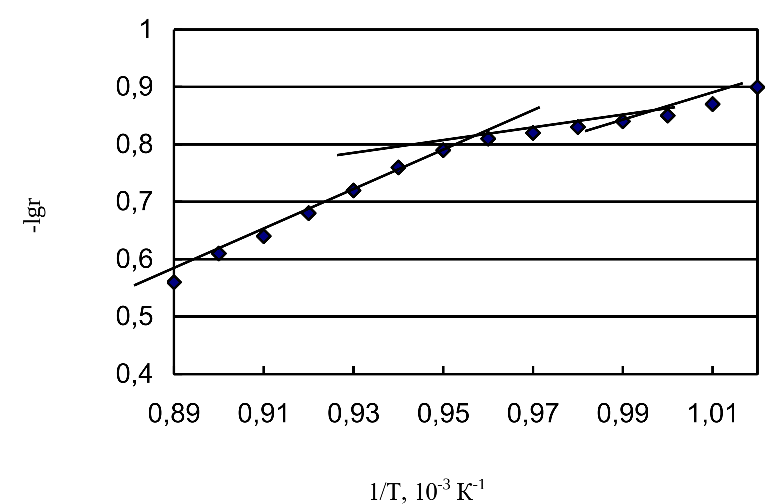


Рис. 3. Зависимость логарифма радиуса растекания алюминия по никелю от обратной температуры

Расчет показал, что энергия активации растекания алюминия по никелю имеет наибольшее значение в области температур 950-990К и составляет 67,7 кДж/моль. Возможно, что на этой стадии происходит интенсивное растворение никеля подложки в алюминиевом расплаве (теплота растворения никеля в жидком алюминии 60,755 кДж/моль [5]). Это приводит к увеличению поверхностного натяжения припоя и сдерживанию его растекания.

В области температур 990-1060К энергия активации равна 8,9кДж/моль. Согласно данным работ [6, 7], такая величина энергии активации соответствует растеканию алюминия по никелю в режиме инерционного растекания. На этой стадии величина энергии активации и малое изменение величины краевого угла смачивания отражают слабое взаимодействие жидкого алюминия и твердого никеля.

В области температур 1060-1123К, соответствующей основной стадии растекания, величина энергии активации составляет 35,2 кДж/моль. Эта величина соответствует энергиям активации диффузии в жидком алюминии фаз $NiAl_3$ и Ni_2Al_3 (соответственно 32,6±4,2 и 42,3±4,8 кДж/моль [1]). Известные термодинамические параметры процессов в системе Al-Ni представлены в таблице. Высокие величины энергии активации и работы адгезии в области температур 1060-1123К подчеркивают химическую природу взаимодействия алюминия с никелем на межфазной границе.

Термодинамические параметры процессов в системах Al-Ni

Параметр	Величина	Источник
Теплота образования алюминидов $-\Delta H_{298}$, кДж/моль:		
Ni_3Al	153,4±8,4	[9]
$NiAl$	142,5±10,5	[10]
	118,6±5,0	[9]
Ni_2Al_3	282,8±16,8	[9]
$NiAl_3$	159,2±10,5	[10]
	150,84±8,4	[9]
$NiAl_2$	158,4±10,5	[10]
Теплота растворения Ni в жидком Al (923-1173К), кДж/моль	60,755	[5]
Энергия активации растворения Ni в жидком Al (923-1173К), кДж/моль	41,4±2,5	[5]
Энергия активации диффузии Ni в жидком Al (923-1173К), кДж/моль	59±2,57,5	[5]
Энергия активации диффузии в жидком Al, кДж/моль		
фазы $NiAl_3$	32,6±4,2	[1]
фазы Ni_2Al_3	42,3±4,8	
Эффективная энергия активации растекания жидкого Al по Ni, кДж/г-ат:		
начальная стадия	8,38±2,1	[6]
завершающая стадия	71,23…79,61	[6]
	58,66…67,04	[8]

Таким образом, процесс растекания алюминия по никелю в условиях пайки имеет сложный характер. Это связано с протеканием химического взаимодействия на границе алюминий - никель. Рост интерметаллидных фаз в результате реактивной диффузии, активируемой увеличением температуры, сдерживает растекание в области высоких температур. Это можно объяснить изменением условий смачивания в результате зарождения и роста интерметаллидных фаз состава Ni_2Al_3 и $NiAl_3$, имеющих значи-

тельную долю ионной составляющей химической связи и, как следствие, пониженную смачиваемость расплавом припоя.

Выводы.

1. Исследована кинетика процесса растекания алюминия по никелю. Установлено, что растекание является активационным процессом и протекает в несколько стадий. На стадии смачивания лимитирующим процессом является удаление оксидных пленок, присутствующих на поверхности никеля и преимущественно на поверхности алюминиевого припоя. На стадии растекания в области относительно низких температур лимитирующими являются процессы растворения и атомной диффузии на межфазной границе алюминий – никель. В области относительно высоких температур лимитирующим процессом является реактивная диффузия, сопровождающаяся образованием интерметаллидных фаз в зоне взаимодействия припоя с подложкой.

2. Рассчитаны энергии активации процесса растекания и работы адгезии алюминия к никелю в условиях пайки. Величина энергии активации растекания алюминия по никелю составила: на начальной стадии (в области температур 950-990К) 67,7 кДж/моль; на стадии инерционного растекания (в области температур 990-1060К) 8,9 кДж/моль; на основной стадии (в области температур 1060-1123К) 35,2 кДж/моль. Работа адгезии алюминия к никелю возрастает с ростом температуры, при 1123К ее величина составила 1824 мДж/м^2.

3. Результаты работы показывают возможность использования алюминия в качестве припоя для пайки никеля и никелевых сплавов, позволяют установить температурно-временной режим пайки никеля алюминием.

Библиографический список

1. Рябов В.Р. Сварка алюминия и его сплавов с другими металлами. – Киев: Наукова думка, 1983. - 262с.

2. Неверов В.И., Пименов В.Н. Взаимодействие никеля с твердым и жидким алюминием // Физика и химия обработки материалов. – 1980. - №4. - С.68-70.

3. Еременко В.Н., Лесник Н.Д., Иванова Т.С. Контактное взаимодействие металлов семейств железа с расплавами на основе алюминия // Порошковая металлургия. – 1977. - №7. - С.46-50.

4. Еременко В.Н., Лесник Н.Д., Иванова Т.С. Кинетика растекания и контактное взаимодействие в системах алюминий – металл семейства железа // Адгезия расплавов и пайка материалов, 1976. Вып.1. - С.47-50.

5. Кинетика растворения никеля в жидком алюминии / Еременко В.Н., Натанзон Я.В., Титов В.П. и др. // Известия АН СССР. Металлы. – 1975. - №1. - С.64-66.

6. Еременко В.Н., Лесник Н.Д., Иванова Т.С. Кинетика растекания алюминия по никелю // Порошковая металлургия. – 1978. - №11. - С.46-51.

7. Исследование кинетики растекания алюминия по железоникелевым и железохромовым сплавам / Еременко В.Н., Лесник Н.Д., Пестун Т.С. и др. // Адгезия расплавов. – К.: Наукова думка, 1974. – С.61-65.

8. Изучение природы и особенностей формирования приконтактной зоны при растекании алюминия по никелю / Еременко В.Н., Иванова Т.С., Лесник Н.Д. и др. // Адгезия расплавов и пайка материалов. – 1989. - №5. - С.21-25.

9. Еременко В.Н., Лесник Н.Д., Кострова Л.И. Исследование межфазного взаимодействия по контактной границе при растекании алюминия по кобальту // Контактные свойства расплавов. - Киев: Наукова думка, 1982. - С.3-7.

10. Кубашевский О., Эванс Э. Термохимия в металлургии. - М.: Издательство иностранной литературы, 1954.- 421с.

Материал поступил в редакцию 27.02.06.

A.A. CHULARIS, G.V.CHUMACHENKO, P.I.SELEZNEV

KINETICS OF ALUMINIUM SPREADING ON NICKEL UNDER BRAZING CONDITIONS

Kinetics of aluminium spreading on nikel for brazing condithions is studied. Wetting and flowing (spreading) of aluminium on nickel are investigated. Aluminium is wetted nickel well and flowed limitedly. Flowing of aluminium on nickel is activated process. This process includes some stages. Energy of activating and work of adhesion are calculated.

ЧУЛАРИС Александр Александрович (р.1938), доктор технических наук (1997), профессор кафедры МиАСП ДГТУ (1998). Окончил РИСХМ (1961). Область научных интересов: металлофизические процессы при получении сварных и паяных соединений.
Имеет более 100 печатных публикаций.

ЧУМАЧЕНКО Галина Викторовна кандидат технических наук (2004), доцент кафедры ЛХОМ ДГТУ (2005). Окончила РИСХМ (1983).
Область научных интересов: металлофизические процессы при формировании литых и паяных конструкций.
Имеет 22 печатные публикации.

СЕЛЕЗНЕВ Павел Игоревич (р.1978), инженер кафедры МиАСП ДГТУ, окончил ДГТУ (2001).
Имеет одну печатную работу.